

УДК 544.454.3+544.08

ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВОЛНЫ РАСПРОСТРАНЕНИЯ ДЕТОНАЦИИ В АЗИДЕ СЕРЕБРА

А. В. Каленский¹, А. А. Звеков¹, М. В. Ананьева¹, В. Г. Кригер¹
В. П. Ципилев², А. В. Разин²

¹Кемеровский государственный университет, 650043 Кемерово, kriger@kemsu.ru

²Томский политехнический университет, 634004 Томск

Показано, что в прессованных таблетках азида серебра игольчатой формы, инициированных импульсом неодимового лазера, формируется детонационная волна. Скорость распространения реакции составила 3.65 ± 0.12 км/с. Исследованы кинетические закономерности инициирования детонационных режимов распространения реакции взрывного разложения, определены пространственные характеристики волны свечения: значения ширины переднего и заднего фронтов волны на полувысоте составили 100 ± 18 и 112 ± 15 мкм соответственно.

Ключевые слова: детонация, детонационная волна, энергетические материалы, азид серебра.

DOI 10.15372/FGV20150311

ВВЕДЕНИЕ

Последние пятьдесят лет интенсивно ведутся экспериментальные исследования кинетики процессов, приводящих к взрывному разложению азидов тяжелых металлов (АТМ). Вместе с тем остается дискуссионным как сам механизм реакции, так и природа отдельных стадий. Экспериментальные закономерности взрывного разложения интерпретируются с позиций микроочаговой модели теплового взрыва [1, 2] или вариантов модели цепного взрыва [3, 4]. Для определения механизма зарождения и распространения волны взрывного разложения по образцу энергетического материала принципиальное значение имеет экспериментальное и теоретическое исследование пространственно-временных характеристик волны реакции (скорость, ширина и форма фронта) и ее зависимости от параметров импульса и образца.

Измерение скорости движения волны реакции взрывного разложения в АТМ, инициированного импульсом неодимового лазера, проведено в работах [1, 5–7]. В круглых прессованных таблетках и в кристаллах азидов серебра и свинца скорость распространения волны реакции составила 1.0 ± 0.6 км/с. Подобное зна-

чение не может быть объяснено с позиций теории детонации, так как оно меньше не только скорости детонационной волны (4.4 км/с), но и скорости звука (1.8 км/с) в АТМ [8]. В работах [5, 9] закономерности распространения реакции взрывного разложения трактуются с позиций механизмов цепной реакции взрывного разложения.

В то же время необходимым условием и доказательством развития процесса по модели теплового взрыва является возникновение волны детонации с характерной скоростью ≈ 4 км/с в азиде серебра. Целью настоящей работы является определение условия возникновения детонации прессованных таблеток азида серебра, инициированной импульсом неодимового лазера, измерение ее скорости и пространственных характеристик распространяющейся волны свечения.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В качестве образцов использовались прессованные таблетки азида серебра (АС) игольчатой формы размерами до $30 \times 0.2 \times 0.05$ мм, синтезированные по методике [10]. Попытки обнаружить детонационные режимы реакции разложения ранее предпринимались для круглых прессованных таблеток азида серебра и свинца. Средняя скорость реакции в таблетках АС составила 0.55 км/с [1]. Предположительно это значение соответствует нестационарному участку формирования детонационной вол-

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Президента РФ (МК-4331.2015.2) и Министерства образования и науки РФ (госзадание № 2014/64).

© Каленский А. В., Звеков А. А., Ананьева М. В., Кригер В. Г., Ципилев В. П., Разин А. В., 2015.

ны. Для проверки этой гипотезы и обнаружения детонационных режимов взрывного разложения необходимо увеличить отношение длины кристалла к его диаметру, следовательно, измерить скорость распространения реакции в таблетках нитевидной формы.

Детальная схема экспериментальной установки приведена в работе [1]. Источником оптического излучения служил неодимовый лазер ($\lambda = 1060$ нм). Максимальная энергия излучения лазера составляла 20 Дж, длительность импульса на полувысоте — 12 нс.

Для прямого измерения скорости распространения реакции взрывного разложения вдоль нитевидного образца (1 на рис. 1) использовалась специальная ячейка. Образец помещался на стекло (2) для предотвращения пролета продуктов разложения через отверстия и облучался лазерным импульсом (3). Стекло устанавливалось на стопу из калиброванных пластмассовых пластин толщиной $L = 0.9$ мм (4), между которыми с двух сторон были зажаты тонкие металлические пластинки толщиной $d = 0.1$ мм. В результате между пластмассовыми пластинами получались эквидистантные щели одинакового размера. Период решетки составлял 1 мм. При создании ячейки использовались пластмассовые пластины с черной матовой поверхностью, отражение света от которой пренебрежимо мало. Под подложкой размещались линза (5), фокусирующая излучение, проходящее через отверстия, и световод (6). После прохождения через световод и полосовые светофильтры свечение попадало на

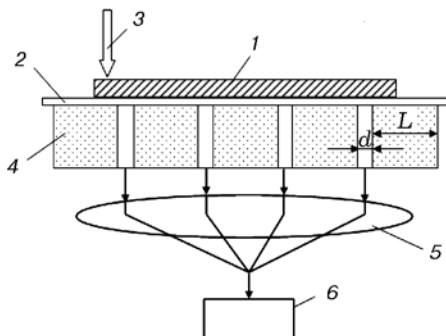


Рис. 1. Схема ячейки, использованной для определения пространственно-временных характеристик волны распространения реакции: 1 — образец, 2 — стеклянная подложка, 3 — инициирующий лазерный импульс, 4 — стопка калиброванных пластмассовых пластин с отверстиями между ними, 5 — линза, 6 — световод

фотоэлектронный умножитель (ФЭУ) фокального обзора. При прохождении волны реакции над отверстием ФЭУ фиксировал пик свечения, что позволяло определять скорость, с которой фронт реакции преодолевал расстояние между соседними отверстиями. Для эксперимента были выбраны прессованные таблетки длиной $16 \div 30$ мм, что позволяло задействовать более 15 отверстий.

На рис. 2 приведена осциллограмма взрывного разложения нитевидной таблетки АС длиной 17 мм. Кривые 1 и 4 — сигналы ФЭУ зонного обзора, которые регистрируют свечение таблетки в зоне облучения в спектральных диапазонах $500 \div 550$ и $800 \div 900$ нм соответственно. В этих областях спектра по данным работы [11] наблюдаются максимумы люминесценции при взрывном разложении АС. Кривая 2 — сигнал ФЭУ панорамного обзора, который регистрирует свечение всей ячейки (как образца, так и разлетающихся продуктов реакции) в спектральном диапазоне $500 \div 550$ нм. Кривая 3 — сигнал ФЭУ фокального обзора, установленного под отверстиями, в спектральном диапазоне $500 \div 550$ нм.

Сигналы ФЭУ зонного обзора имеют простую структуру: индукционный период, в течение которого свечение отсутствует; экспоненциальное увеличение сигнала свечения, максимум свечения и уменьшение сигнала. Длитель-

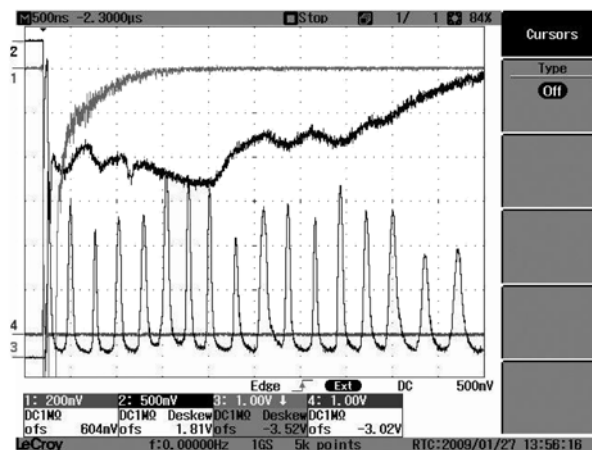


Рис. 2. Типичная осциллограмма взрывного свечения:

1 и 4 — сигналы ФЭУ зонного обзора в спектральных диапазонах $500 \div 550$ и $800 \div 900$ нм соответственно, 2 — сигнал ФЭУ панорамного обзора в спектральном диапазоне $500 \div 550$ нм, 3 — сигнал ФЭУ фокального обзора в спектральном диапазоне $500 \div 550$ нм

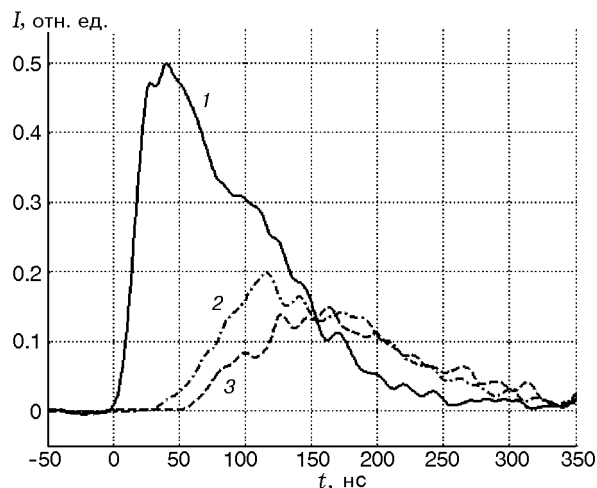


Рис. 3. Кинетические зависимости взрывного свечения прессованных таблеток АС из зоны лазерного воздействия (в спектральном диапазоне $500 \div 550$ нм):

1 — энергия инициирования превышает пороговое значение в 9 раз, 2 — в 4 раза, 3 — в 1.5 раза

ность сигналов ФЭУ зонного обзора составляет $150 \div 300$ нс, после чего свечение из зоны воздействия не наблюдается. На рис. 3 представлены кинетические зависимости взрывного свечения, регистрируемого из зоны лазерного воздействия в области спектра $500 \div 550$ нм, при превышении пороговой плотности энергии инициирования взрывного разложения в 9 (1), 4 (2) и 1.5 (3) раза. Начальный участок сигнала ФЭУ зонного обзора описывается экспоненциальной зависимостью с константой $k = (7 \div 20) \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. С увеличением энергии импульса длительность индукционного периода уменьшается, а константа скорости экспоненциального возрастания сигнала увеличивается. Амплитуда сигнала ФЭУ зонного обзора существенно зависит от энергии импульса. Общей закономерностью инициирования взрывного разложения таблеток и кристаллов является зависимость индукционного периода от энергии импульса, в то время как зависимости амплитуды и константы экспоненциального возрастания сигнала от энергии различаются: в кристаллах эти кинетические параметры не зависят от энергии импульса [7], а в прессованных таблетках АС увеличиваются с ростом энергии импульса.

Сигналы ФЭУ панорамного обзора имеют сложную структуру и большую длительность. Первый максимум ФЭУ панорамного обзора

обусловлен развитием реакции взрывного разложения в зоне лазерного воздействия [1]. Последующая структура сигнала ФЭУ панорамного обзора связана с распространением реакции по образцу, со свечением продуктов реакции, в том числе при ударе продуктов о стенки ячейки.

Для определения пространственно-временных характеристик распространения волны свечения использована методика [12], экспериментальной основой которой является фиксирование свечения на ФЭУ фокального обзора, установленного под отверстиями в непрозрачной подложке. Интенсивность свечения разлетающихся продуктов реакции в данной геометрии опыта значительно ослабевает в связи с их расширением. Расстояние L между отверстиями и ширину отверстия d выбирали таким образом, чтобы пики свечения были хорошо выделены, сигнал между ними уменьшался до нуля, отсутствовало плато в области максимума сигнала, положение амплитуды точно фиксировалось. При $d = 200$ мкм наблюдались невыраженные пики с существенным плато около максимума. Уменьшение расстояния между отверстиями до $L = 400$ мкм приводило к наложению пиков друг на друга и отсутствию области с нулевым сигналом. Экспериментально установленные оптимальные значения L и d для данной серии образцов составили 900 и 100 мкм и использовались в дальнейших экспериментах.

Скорость волны на участке между соседними отверстиями может быть рассчитана по выражению

$$v = (L + d)/\tau_1, \quad (1)$$

где τ_1 — промежуток времени между двумя максимумами свечения, возникающими при прохождении волны над соседними отверстиями. Экспериментально полученная скорость распространения волны реакции составила 3.65 ± 0.12 км/с, что подтверждает результаты, полученные ранее в [6, 13], повышая степень их достоверности.

ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫЕ ПАРАМЕТРЫ ВОЛНЫ СВЕЧЕНИЯ ВЗРЫВНОГО РАЗЛОЖЕНИЯ

Приближенно оценить ширину волны свечения можно непосредственно из осциллограммы. Для этого необходимо воспользоваться величиной временного промежутка между двумя

пиками свечения, в течение которого сигнал отсутствует [12]. За это время очаг свечения с определенной по выражению (1) скоростью перемещается на расстояние между отверстиями L за вычетом ширины очага [12]. Однако такой способ оценки не позволяет определить форму волны. Поэтому возникает более сложная задача восстановления пространственного распределения свечения в волне реакции. Обозначим через $y(x)$ распределение по координате интенсивности свечения. Тогда измеряемая кинетика свечения может быть представлена в виде

$$I(t) = \int K(x - Vt)y(x)dx. \quad (2)$$

Вид интегрального оператора K определяется формой отверстия. Учет конструктивных элементов конкретной ячейки (наличие дополнительной прозрачной подложки, конечная толщина непрозрачной подложки, отклонения от прямоугольной формы отверстия) проведен в работе [12], где также получено аналитическое выражение для K .

Экспериментально полученная зависимость интенсивности свечения от времени представляет собой набор дискретных значений через одинаковые промежутки времени (1 нс). Поэтому перейдем в (2) от непрерывных величин к дискретным:

$$I_i = \sum K_{ij}y_j. \quad (3)$$

Для получения $y_j(x)$ теперь требуется умножить выражение (3) справа на обратную матрицу K_{ij}^{-1} :

$$y_j = \sum K_{ij}^{-1}I_i. \quad (4)$$

Таким образом, задача восстановления пространственной формы интенсивности свечения сводится к построению матрицы обратного оператора.

Для определения пространственных характеристик волны реакции взрывного разложения вначале устранялись случайные шумы сигнала $I(t)$ методом скользящего окна [14], затем из сигнала вырезалась область, в которой находился один из пиков свечения, и проводилась нормировка его на максимум (в этом случае амплитуда сигнала равна 1). После этого на вырезанный пик свечения действовали обратным оператором K_{ij}^{-1} . Для проверки правильности работы алгоритма на полученное

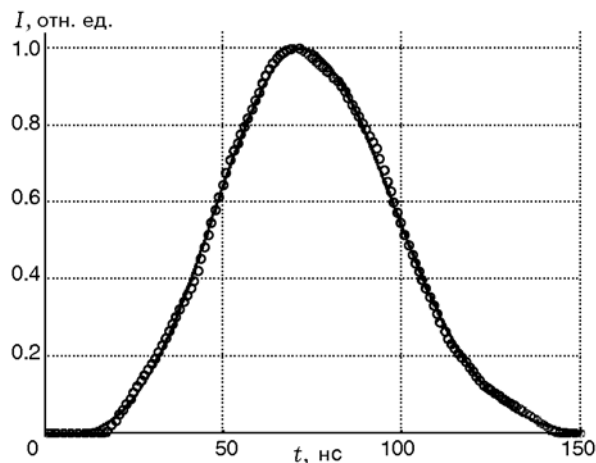


Рис. 4. Типичная кинетическая зависимость одиночного пика свечения кривой 3 на рис. 2, фиксируемого ФЭУ фокального обзора:

кружки — исходный нормированный сигнал, линия — восстановленный сигнал после действия обратного и прямого операторов K_{ij}

распределение интенсивности свечения в волне реакции действовали оператором K и сравнивали полученный сигнал $I(t)$ с исходным. На рис. 4 представлены исходный нормированный сигнал и восстановленный сигнал после действия обратного (K_{ij}^{-1}) и прямого (K_{ij}) операторов. Отклонение восстановленного сигнала от исходного не превышает 2 %, что свидетельствует о правильности работы алгоритма.

Результатом действия на сигнал $I(t)$ обратного оператора (K_{ij}^{-1}) является пространственное распределение интенсивности свечения $y(x)$. Типичное распределение интенсивности свечения, движущегося по нитевидной таблетке азидо серебра со скоростью 3.68 км/с, приведено на рис. 5. Видно, что распределение практически симметрично. Для определения характерных параметров распределения вычисляли общую ширину волны свечения на полувысоте, ширину заднего и переднего фронтов на полувысоте и ширину волны по основанию (уровень 5 % амплитуды). Осредненное по всем измерениям (около 150) значение ширины переднего фронта волны свечения на полувысоте составило 100 ± 18 мкм, заднего — 112 ± 15 мкм, общая ширина по основанию 240 ± 25 мкм.

Характерная длительность свечения зоны, включающая время реакции разложения и время разлета продуктов реакции, может быть

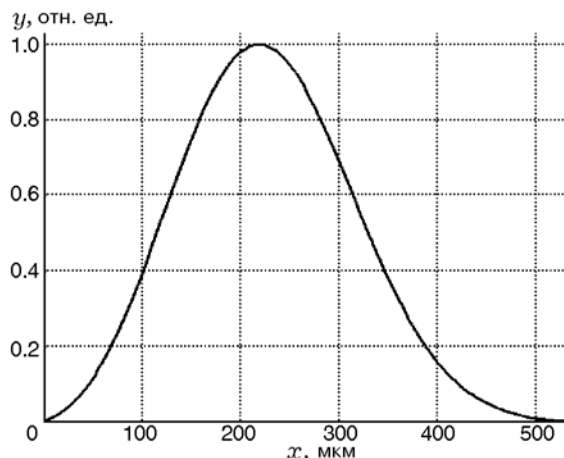


Рис. 5. Пространственное распределение интенсивности свечения в детонационной волне, рассчитанное по результатам обработки одиночного пика свечения кривой 3 на рис. 2, фиксируемого ФЭУ фокального обзора

оценена как отношение ширины волны свечения к скорости ее распространения: $l/v \approx 70 \pm 5$ нс. Полученное значение существенно меньше характерной длительности свечения в зоне лазерного воздействия (см. рис. 2). Даже при девятикратном превышении пороговой плотности энергии инициирования взрывного разложения длительность свечения в зоне облучения составляет не менее 150 нс и при уменьшении энергии сильно возрастает. Характерная длительность свечения за пределами зоны воздействия не зависит от энергии иницирующего импульса и расстояния от места облучения. Это доказывает неэквивалентность условий зарождения и распространения реакции: возможно, инициирование реакции начинается в отсутствие большого давления, характерного для детонационной волны.

Сравнение пространственно-временных характеристик волны свечения взрывного разложения в нитевидных кристаллах [12] и таблетках азида серебра доказывает различие механизмов распространения реакции. Полученная скорость в три раза больше, а характерная длительность свечения в три раза меньше, чем в кристаллах. Эти значения являются характерными для детонационной волны. Дополнительным доказательством разных механизмов распространения реакции в кристаллах и таблетках азида серебра служат резкий звук и разрушение стеклянной подложки. При инициировании взрывного разложения

кристаллов азида серебра неодимовым лазером стеклянная подложка толщиной 900 мкм разрушается только после $5 \div 10$ испытаний (взрывов).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе определены условия возникновения свечения, сопровождающего распространение детонационной волны в прессованных нитевидных таблетках азида серебра при его иницировании первой гармоникой неодимового лазера. Измерены пространственно-временные характеристики свечения. Экспериментальная скорость распространения свечения составила 3.65 ± 0.12 км/с. Средняя длительность свечения 70 ± 5 нс.

Представляет большой интерес определение времени свечения в зоне химической реакции и ширины этой зоны в волне детонации. К сожалению, в данной постановке эксперимента это невозможно, поскольку суммарно регистрируется свечение из зоны химической реакции и свечение продуктов на начальном этапе их разлета. Задачу определения ширины зоны химической реакции можно решить, если удастся провести отдельные измерения времени свечения продуктов разлета, устранив влияние подложки и окружающего воздуха. Такие эксперименты нами начаты.

Авторы выражают глубокую признательность проф. В. М. Лисицыну за помощь в проведении экспериментов и интерес к работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Корепанов В. И., Лисицын В. М., Олешко В. И., Ципилев В. П. К вопросу о кинетике и механизме взрывного разложения азидов тяжелых металлов // Физика горения и взрыва. — 2006. — Т. 42, № 1. — С. 106–119.
2. Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Фурегга Р. И., Звекон А. А., Каленский А. В. Взрывчатое разложение тэна с нанодобавками алюминия при воздействии импульсного лазерного излучения различной длины волны // Хим. физика. — 2013. — Т. 32, № 8. — С. 39–42.
3. Каленский А. В., Ананьева М. В., Кригер В. Г., Звекон А. А. Коэффициент захвата электронных носителей заряда на экранированном отталкивающем центре // Хим. физика. — 2014. — Т. 33, № 4. — С. 11–16.
4. Кригер В. Г., Каленский А. В., Звекон А. А. Релаксация электронно-возбужденных

- продуктов твердофазной реакции в кристаллической решетке // Хим. физика. — 2012. — Т. 31, № 1. — С. 18–22.
5. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Кречетов А. Г., Митрофанов А. Ю. Распространение цепной реакции взрывного разложения в кристаллах азидов серебра // Физика горения и взрыва. — 2003. — Т. 39, № 6. — С. 104–106.
 6. Скрипин А. С., Ципилев В. П. Кинетические характеристики процесса взрывного разложения азидов тяжелых металлов при лазерном импульсном возбуждении // Изв. вузов. Физика. — 2009. — № 8/2. — С. 316–319.
 7. Кригер В. Г., Каленский А. В., Звекон А. А. Определение начала механического разрушения кристаллов азидов серебра, инициированных лазерным импульсом // Физика горения и взрыва. — 2010. — Т. 46, № 1. — С. 69–72.
 8. Орленко Л. П. Физика взрыва и удара. — М.: Физматлит, 2006.
 9. Кригер В. Г., Каленский А. В., Звекон А. А., Ананьева М. В., Боровикова А. П. Диффузионная модель разветвленной цепной реакции взрывного разложения азидов тяжелых металлов // Хим. физика. — 2009. — Т. 28, № 8. — С. 67–71.
 10. Куракин С. И., Диамант Г. М., Пугачев В. М. Морфология кристаллов азидов серебра, выращенных из гидроксида аммония // Изв. АН СССР. Сер. Неорган. материалы. — 1990. — Т. 26, вып. 11. — С. 2301–2304.
 11. Алукер Э. Д., Адуев Б. П., Кречетов А. Г., Нурмухаметов Д. Р., Пашпекин А. С., Тупицин Е. В., Швайко В. Н. Люминесценция азидов серебра при импульсном возбуждении // Физика горения и взрыва. — 2005. — Т. 41, № 4. — С. 117–123.
 12. Кригер В. Г., Каленский А. В., Звекон А. А., Боровикова А. П., Гришаева Е. А. Определение ширины фронта волны реакции взрывного разложения азидов серебра // Физика горения и взрыва. — 2012. — Т. 48, № 4. — С. 129–136.
 13. Tsipilev V., Razin A., Lisitsyn V., Damamm Z., Malis D. On the question of predetonation stage of explosive decomposition of heavy metal azides // Изв. вузов. Физика. — 2012. — Т. 55, № 11/3. — С. 235–238.
 14. Кригер В. Г., Каленский А. В., Ананьева М. В., Боровикова А. П. Зависимость критической плотности энергии инициирования взрывного разложения азидов серебра от размеров монокристаллов // Физика горения и взрыва. — 2008. — Т. 44, № 2. — С. 76–78.

*Поступила в редакцию 23/III 2014 г.,
в окончательном варианте — 6/XI 2014 г.*